

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG



(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
6. März 2003 (06.03.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/018704 A1

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C09J 183/10,  
175/02, C08G 18/61, 77/458

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHINDLER, Wolfram [DE/DE]; Bürgermeister-Prenn-Strasse 8, 82008 Unterhaching (DE). SCHÄFER, Oliver [DE/DE]; Waldfriedhofstrasse 12, 81377 München (DE). CHATZINERANTZIS, Martina [DE/DE]; Haydnstrasse 3a, 82054 Sauerlach (DE). PACHALY, Bernd [DE/DE]; Öd-Utzenstrasse 1, 84561 Mehring (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/07126

(74) Anwälte: FRITZ, Helmut usw.; Wacker-Chemie GmbH, Zentralbereich PML, Hanns-Seidel-Platz 4, 81737 München (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:  
27. Juni 2002 (27.06.2002)

(81) Bestimmungsstaaten (national): CN, JP, PL, US.

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

101 41 235.5 23. August 2001 (23.08.2001) DE

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): CONSORTIUM FÜR ELEKTROCHEMISCHE INDUSTRIE GMBH [DE/DE]; Zielstattstrasse 20, 81379 München (DE).

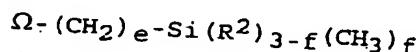
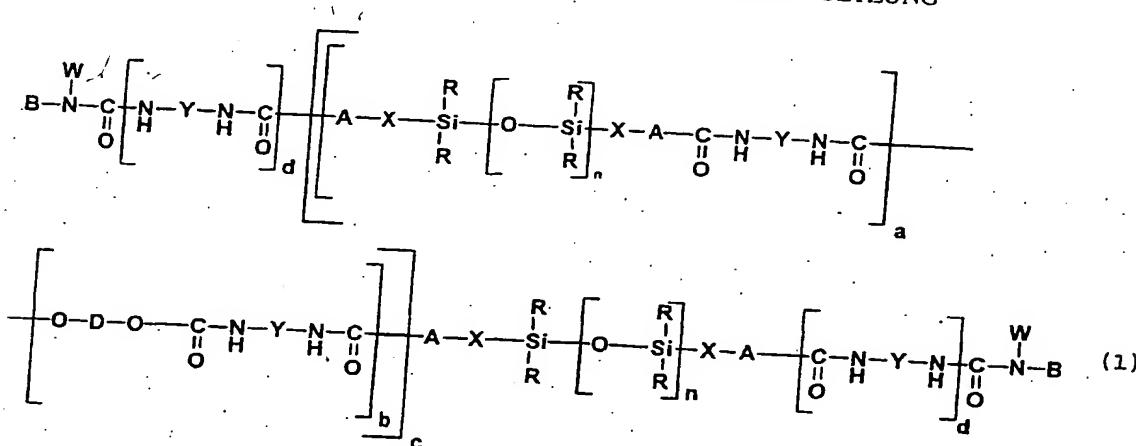
Veröffentlicht:

mit internationalem Recherchenbericht

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Titel: MOISTURE CROSS-LINKING ELASTIC COMPOSITION

(54) Bezeichnung: FEUCHTIGKEITSVERNETZENDE ELASTISCHE ZUSAMMENSETZUNG



(3)

(57) Abstract: The invention relates to moisture cross-linking compositions containing (A) 100 parts per weight of a silane-terminated polydiorganosiloxane-urea/urethane copolymer of general formula (1), and (B) between 0.1 and 20 parts per weight of silane of general formula (3):  $\Omega-(CH_2)_e-Si(R^2)_3-f(CH_3)_f$ , in which R, X, A, Y, D, B, W, n, a, b, c, d,  $\Omega$ ,  $R^2$ , e and f are defined as per claim 1.

WO 03/018704 A1

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen, enthaltend (A) 100 Gewichtsteile an silanterminiertem Polydiorganosiloxan-Urea/Urethan-copolymer der allgemeinen Formel (1), und (B) 0,1 bis 20 Gewichtsteile an Silan der allgemeinen Formel (3):  $\Omega-(CH_2)_e-Si(R^2)_3-f(CH_3)_f$  worin R, X, A, Y, D, B, W, n, a, b, c, d,  $\Omega$ ,  $R^2$ , e und f die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen aufweisen.



*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

## Feuchtigkeitsvernetzende elastische Zusammensetzung

Die Erfindung betrifft eine einkomponentige, reaktive, feuchtigkeitsvernetzende Zusammensetzung auf Basis von Polydimethylsiloxan-Urea/Urethan-Copolymeren mit Alkoxy silanendgruppen und deren Verwendung als Schmelzklebstoff.

Schmelzklebstoffe sind in der Regel physikalisch abbindende Klebstoffe, die bei Raumtemperatur einkomponentig in fester, im wesentlichen lösungsmittelfreier Form vorliegen. In Anlehnung an der angelsächsischen Sprachgebrauch werden diese auch als „hotmelts“ bezeichnet.

Die Polymerkomponenten oder Bindemittel derartiger Schmelzkleber haben einen vorwiegend linearen kettenförmigen Aufbau und befinden sich bei Raumtemperatur in einem amorphen, glasartigen oder teilkristallinen Zustand. Zur Erreichung und Einstellung weiterer spezieller Eigenschaften wie z.B. Kohesionsfestigkeit, Viskosität, Erweichungspunkt oder Abbindegeschwindigkeit können in der Klebstoffformulierung weitere Zusätze notwendig sein. Hierzu gehören klebrigmachende Harze zur Verbesserung der Benetzungseigenschaften und Erhöhung der Adhäsion, Weichmacher zur Erhöhung der Flexibilität und Erniedrigung der Schmelzviskosität, Stabilisatoren und Antioxidantien zur Verminderung der oxidativen Veränderung während der Verarbeitung der Schmelze unter Sauerstoffeinfluss, sowie zur Verbesserung des Alterungsverhaltens der geklebten Fuge. Weiterhin können Füllstoffe zur Festigkeitserhöhung und gegebenenfalls zur Kostenreduzierung eingesetzt werden. Die wichtigsten Schmelzkleber basieren auf Bindemittelsystemen wie Polyurethane, Epoxidharze, Polyamide, Ethylen-Vinylacetat-Copolymere, Styrol-Blockcopolymere, gesättigte Polyester, Polyolefin-Copolymere, synthetische Kautschuke und Mischungen dieser Systeme.

Während die amorphen Polymere über einen mehr oder weniger breiten Temperaturbereich erweichen, zeigen die kristallinen oder teilkristallinen einen mehr oder weniger scharfen

Schmelzpunkt. Amorphe Systeme von Copolyestern beispielsweise zeigen vielfach selbst bei hohen Molmassen einen noch vorhandenen kalten Fluss und sind daher nur eingeschränkt oder nur in Kombination mit sehr hochmolekularen Copolymeren brauchbar.

Ein Weg um die Kohesionsfestigkeit und Warmformbeständigkeit (Klebeeigenschaften auch bei höherer Gebrauchstemperatur) von Schmelzklebstoffen zu erhöhen ist die Verwendung von reaktiven Klebstoffen. Als besondere Form der Hotmelts sind solche reaktive Formulierungen bekannt, die eine Kombination aus physikalisch abbindenden und chemisch reagierenden Systemen darstellen. Dazu werden in der Regel hydroxyfunktionelle Polyester mit einem Überschuss an Diisocyanaten umgesetzt und daraus isocyanatterminierte Polymere hergestellt. Diese können nun bei Zutritt von Luftfeuchtigkeit unter Vernetzung aushärten. Da die Polyurethan-Hotmelts systembedingt mehrere Schwächen aufweisen wie Isocyanat-Monomer-Emission (monomere aromatische Diisocyanate wie MDI oder TDI, bzw. deren korespondierenden Amine stehen unter Verdacht krebserregend zu sein), CO<sub>2</sub>-Abspaltung die zur Blasenbildung führt oder die Vergilbungsneigung bei aromatischen Isocyanaten werden derzeit auch viele Systeme auf Basis silanvernetzender Polymere entwickelt, die bezüglich der oben genannten Nachteile eine aussichtsreiche Alternative darstellen. Die Prepolymere werden dabei mit silanfunktionellen Monomeren umgesetzt, so dass daraus ebenso feuchtigkeitsnachvernetzende Schmelzklebstoffe herstellbar sind.

Zur Vereinfachung der Verarbeitung werden einkomponentige Systeme bevorzugt, da sie einfacher applizierbar und automatisierbar sind. Da im Falle von reaktiven Schmelzklebern die Nachhärtungsgeschwindigkeit solcher einkomponentiger Massen meist moderat eingestellt wird, um eine ausreichende Lagerstabilität sicherzustellen, ist die Variation des Eigenschaftsprofils schwieriger. Probleme bei nicht nachvernetzenden Systemen sind hingegen hier meist die Warmformbeständigkeit (kalter Fluss, wieder aufschmelzbar), die

mechanischen Eigenschaften und die Haftung auf dem Untergrund. Mit den oben beschriebenen feuchtigkeitshärtenden Systemen werden diese Nachteile weitgehend vermieden. Zweikomponentige Massen zeigen meist ein deutlich besseres Eigenschaftsprofil. sind jedoch hinsichtlich der Verarbeitung problematisch. Die Mischung der Komponenten, z.B. über Statikmischer bei der Applikation, muss gleichmäßig sein um eine konstante Verarbeitungszeit und Endqualität sicherzustellen. Meist muss hier ein Kompromiss zwischen Aushärtzeit und Verarbeitungszeit getroffen werden. Der für zweikomponentige Kleber nötige apparative Aufwand ist ebenso deutlich größer und damit die Anwendung meist teurer.

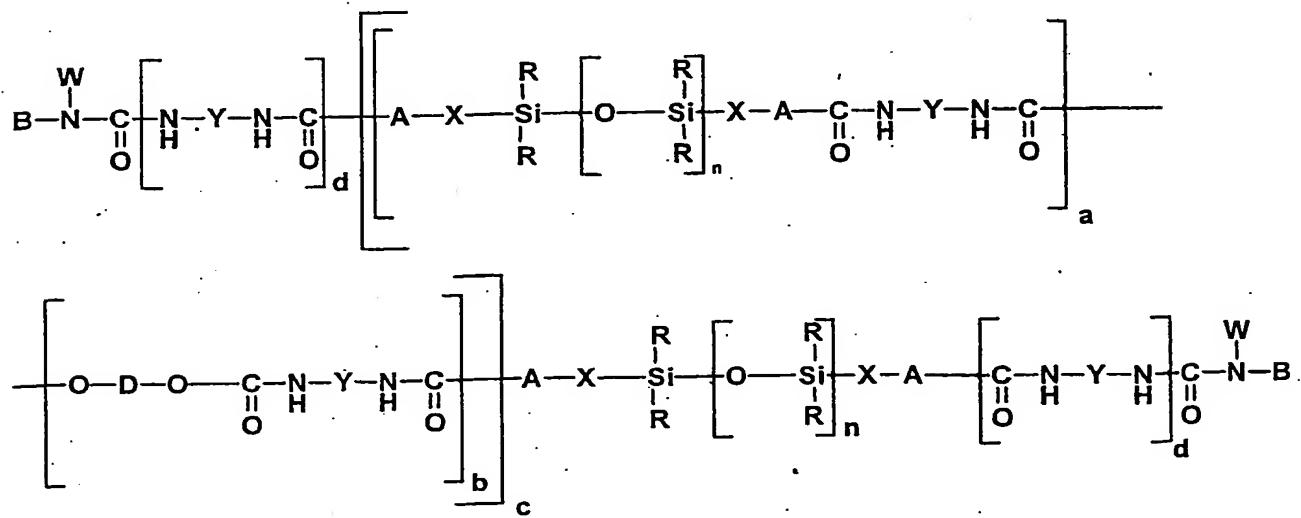
Organosiloxan-Copolymere, speziell Polydiorganosiloxan-Urethan- und Polydiorganosiloxan-Urea-Copolymere sind bekannt. Die verschiedenen Systeme sind in der Übersicht von I. Yilgör und J.E. McGrath in Adv. Polym. Sci., 1988, 86, S. 1-86 beschrieben. Eine Vielzahl weiterer Veröffentlichungen und Patente beschäftigt sich mit speziellen Anwendungen von derartigen Blockcopolymeren. Polyurethane und Siliconelastomere sind in weiten Bereichen komplementär. Daher liefert die Kombination beider Systeme Materialien mit neuartigen, ausgezeichneten Eigenschaften. Polyurethane zeichnen sich durch ihre gute mechanische Festigkeit, Elastizität und eine sehr gute Haftung und Abriebfestigkeit aus. Siliconelastomere dagegen besitzen eine ausgezeichnete Temperatur, UV-, Bewitterungsstabilität und speziellen Oberflächeneigenschaften (geringe Oberflächenspannung). Dabei behalten sie ihre elastischen Eigenschaften bei tieferen Temperaturen bei und neigen deshalb auch nicht zur Versprödung.

In der Übersicht von I. Yilgör et al. in Polymer, 1984 (25), S. 1800-1816 sind die Eigenschaften von Polydiorganosiloxan-Urea-Copolymeren genauer untersucht. Die Silicon- und Isocyanat-Polymerbausteine sind in einem weiten Bereich problemlos mischbar. Die mechanischen Eigenschaften werden durch das Verhältnis der unterschiedlichen Polymerblöcke bestimmt. Die Polydiorganosiloxane bilden dabei die sogenannten Weichsegmente

und sind für die Elastizität entscheidend, die Diisocyanate bilden die Hartsegmente und sind für die mechanischen Eigenschaften ausschlaggebend. Durch Ausbildung von Wasserstoffbrückenbindungen zwischen Urethan oder Harnstoff-Bindeguppen werden die mechanischen Eigenschaften bestimmt. Durch die starken Wechselwirkungen der Wasserstoffbrücken zwischen den Harnstoffeinheiten sind diese Massen meist sehr hoch viskos oder fest bei Raumtemperatur.

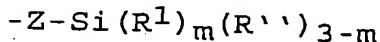
In den oben genannten Übersichten werden eine Vielzahl von Anwendungen und Anwendungsmöglichkeiten beschreiben und diskutiert. In EP-A-250248 wird die Herstellung und eine mögliche Anwendung dieser Copolymere für Antihhaftbeschichtungen und Haftklebstoffe beschrieben. In WO 96/34030 wird ferner eine mögliche Herstellung von Polysiloxan-Urea-Copolymere mit reaktiven und nichtreaktiven Endgruppen beschrieben. Als reaktive Endgruppen werden dabei unter anderem auch Alkoxy silane zur Endterminierung der Polymere eingesetzt.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen, enthaltend (A) 100 Gewichtsteile an silanterminiertem Polydiorganosiloxan-Urea/Urethan-Copolymer der allgemeinen Formel 1



worin

- R einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,
- X einen Alkylen-Rest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte Methyleneinheiten durch Gruppen -O- ersetzt sein können,
- A ein Sauerstoffatom oder eine Aminogruppe -NR'-,
- R Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen,
- Y einen gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,
- D einen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl- oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylester substituierten Alkylenrest mit 1 bis 700 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte Methyleneinheiten durch Gruppen -O-, -COO-, -OCO-, oder -OCOO-, ersetzt sein können,
- B einen Rest der allgemeinen Formel 2



(2),

- Z einen Alkylen-Rest mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen,
- R<sup>1</sup> einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierter Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
- R<sup>2</sup> einen mit Feuchtigkeit reaktiven Rest, der ausgewählt wird aus C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-, C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Acyl-, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylaminoxy- und C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyloximostenen,
- W einen Rest B oder Wasserstoff,
- m den Wert 0, 1 oder 2,
- n eine ganze Zahl von 1 bis 300,
- a eine ganze Zahl von mindestens 1,
- b 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 30,
- c eine ganze Zahl von 1 bis 30 und
- d den Wert 0 oder 1 bedeuten,

mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung der Einheiten so gewählt ist, dass das Copolymer einen Schmelzpunkt im Bereich von 30 - 200 °C besitzt und

(B) 0,1 bis 20 Gewichtsteile an Silan der allgemeinen Formel 3



wobei

- Ω eine Gruppe, die ausgewählt wird aus -NHR<sup>3</sup>, -NR<sup>3</sup>- (CH<sub>2</sub>)<sub>g</sub>-NHR<sup>3</sup>, Acryl-, Methacryl-, OCN-, -SH, Glycidoxy- oder Chlorrest,
- R<sup>3</sup> Wasserstoff oder einen gegebenenfalls halogensubstituierten C<sub>1-18</sub>-Kohlenwasserstoffrest,
- R<sup>2</sup> eine Methoxy- oder Ethoxygruppe,
- e die Werte 1 oder 3
- f die Werte 0 oder 1 und
- g Werte von 1 bis 10 bedeuten.

Die Zusammensetzungen auf Basis Polydimethylsiloxan-Urea/Urethan-Copolymeren sind sehr gut als einkomponentige, reaktive, über Silanendgruppen feuchtigkeitsvernetzende Schmelzkleber einsetzbar. Copolymer (A) ist im Schmelzkleber, Bindemittel und Silan (B) wirkt als Haftvermittler. Durch die geeignete Wahl der Polymerbausteine bei der Herstellung der silanterminierten Copolymeren sind so Schmelzkleber zugänglich, die sich durch hervorragende mechanische Eigenschaften und sehr gute Haftungseigenschaften auszeichnen. Ferner können die Anwendungseigenschaften wie Auftragstemperatur, Schmelzviskositäten und Verarbeitungseigenschaften in einem weiten Bereich eingestellt werden.

Der Schmelzklebstoff wird in Form einer einkomponentigen festen Masse verarbeitet und muss somit vor Applikation nicht zusätzlich bei höherer Temperatur mit weiteren Komponenten vermischt werden. Nach dem Heißauftrag bildet der Schmelzkleber nach Abkühlung ein elastisches vorverfestigtes Material. Durch

Zutritt von Luftfeuchtigkeit härtet der Klebstoff unter Ausbildung eines Netzwerks über Silankondensation aus. Aufgrund der hohen mechanischen Festigkeit und der guten Haftungseigenschaften über die Silanendgruppen kann der Schmelzkleber für einen weiten Bereich von elastischen Verbindungen von Formteilen eingesetzt werden.

Vorzugsweise bedeutet R dabei einen einwertigen, Kohlenwasserstoffrest, vorzugsweise Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere nicht substituiert. Besonders bevorzugte Reste R sind Methyl und Phenyl.

Vorzugsweise bedeutet X einen Alkylen-Rest mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen. Vorzugsweise ist der Alkylen-Rest X nicht unterbrochen. Besonders bevorzugt ist X ein n-Propylrest.

Vorzugsweise bedeutet A eine Aminogruppe, d.h. Polysiloxan-Harnstoff-Copolymere sind bevorzugt.

Vorzugsweise bedeutet R' Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, insbesondere Wasserstoff.

Vorzugsweise bedeutet Y einen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 13, insbesondere 6 Kohlenstoffatomen, der vorzugsweise nicht substituiert ist.

Vorzugsweise bedeutet D einen Alkylenrest mit 2 bis 20, insbesondere 10 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt ist ein Rest mit vier Kohlenstoffatomen. Ebenfalls vorzugsweise bedeutet D einen Polyoxyalkylenrest, insbesondere Polyoxyethylenrest oder Polyoxypropylenrest mit mindestens 10 höchstens 200 Kohlenstoffatomen.

Vorzugsweise bedeutet Z einen Alkylen-Rest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere Methylen und Propylen.

$R^1$  bedeutet vorzugsweise einen unsubstituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere Methyl.

Vorzugsweise bedeutet  $R^2$  einen Methoxy-, Ethoxy oder Acetoxyrest.

$n$  bedeutet vorzugsweise eine ganze Zahl von mindestens 3, insbesondere mindestens 10 und vorzugsweise höchstens 200, insbesondere höchstens 50.

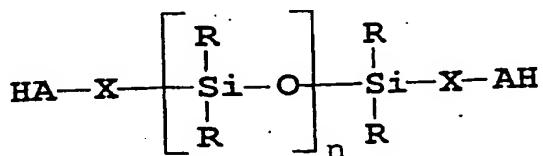
$a$  bedeutet vorzugsweise eine ganze Zahl von mindestens 2, insbesondere mindestens 5 und vorzugsweise höchstens 50, insbesondere höchstens 20.

$b$  bedeutet vorzugsweise ganze Zahl von höchstens 10,

$c$  bedeutet vorzugsweise eine ganze Zahl von mindestens 2, und vorzugsweise höchstens 10.

Die Polydiorganosiloxanabschnitte im Copolymer (A) weisen bevorzugt eine Molekulargewicht Mw von 500 bis 30000, insbesondere 1000 bis 8000, besonders bevorzugt 2000 bis 4000 auf.

Die Copolymer (A) der allgemeinen Formel 1 können hergestellt werden durch Umsetzung von aminoalkyl- oder hydroxyalkylterminierten Polydiorganosiloxanen der allgemeinen Formel 4



(4),

mit Diisocyanaten der allgemeinen Formel 5

OCN-Y-NCO

(5),

und Silanen der allgemeinen Formel 6



und falls  $b$  mindestens 1 ist, zusätzlich mit  $\alpha, \omega$ -OH-terminierten Alkylenen der allgemeinen Formel 7



wobei  $R$ ,  $X$ ,  $A$ ,  $R'$ ,  $Y$ ,  $D$ ,  $B$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R''$ ,  $W$ ,  $m$ ,  $n$ ,  $a$ ,  $b$ ,  $c$  und  $d$  die bei den allgemeinen Formeln 1 und 2 angegebenen Bedeutungen aufweisen und

- P den Wert 1,
- E eine Isocyanatgruppe oder eine Aminogruppe  $-NHR'''$ , wobei  $R'''$  Wasserstoff oder einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeutet, oder
- P den Wert 2 und
- E einen  $-NH$ -Rest bedeuten.

Die Polydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4 sind vorzugsweise weitgehend frei von Kontaminationen aus höherfunktionellen und monofunktionellen Bestandteilen. Monofunktionelle Bestandteile führen bei der Umsetzung zum Polymer zu nicht reaktiven Endgruppen, die in der Endterminierung durch die Silane nicht mehr umgesetzt werden können. Nicht reaktive Endgruppen führen zur Problemen beim Polymeraufbau während der Umsetzung und ergeben Produkte, die teilweise zu einem unerwünschten Ausbluten aus dem Vulkanisat führen können. Höherfunktionelle Polydiorganosiloxane sind ebenso unerwünscht, da diese bei der Umsetzung mit Diisocyanaten zur Bildung von Vernetzungspunkten führen, die bereits zu einer Verzweigung der Polymerketten bei der Polyadditionsreaktion führen. Derartig vorvernetzte Materialien sind hinsichtlich der Verarbeitung meist unbrauchbar.

Die Herstellung geeigneter Aminoalkylpolydiorganosiloxane ist bekannt und kann beispielsweise wie von J.J. Hoffmann, C.M. Leir in Polymer Int. 1991 (24), S- 131-138 beschrieben durchgeführt werden. Ebenso bekannt ist die Herstellung von Hydroxyalkylpolydiorganosiloxanen, welche z.B. über Hydrosilylierung von  $\alpha,\omega$ -Dihydridopolydiorganosiloxane mit  $\alpha,\omega$ -Hydroxyalkylenen erfolgt. Derartige Produkte sind kommerziell verfügbar.

Die Polydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4 weisen bevorzugt eine Molekulargewicht Mw von 500 bis 30000, insbesondere 1000 bis 8000, besonders bevorzugt 2000 bis 4000 auf.

Die  $\alpha,\omega$ -OH-terminierten Alkylene der allgemeinen Formel 7 sind bevorzugt Polyalkylene oder Polyoxyalkylene. Diese sollten aus den gleichen Gründen, wie bei den Polydiorganosiloxanen beschrieben, weitgehend frei von Kontaminationen aus mono-, tri- oder höherfunktionellen Polyoxyalkylenen sein. Hierbei können Polyetherpolyole, Polytetramethylendiole, Polyesterpolyole, Polycaprolactondiole aber auch  $\alpha,\omega$ -OH-terminierte Alkyle oder Polyalkylene mit zwei bis 10 Kohlenstoffatomen oder auf Basis von Polyvinylacetat, Polyvinylacetatethylenencopolymeren, Polyvinylchloridcopolymer, Polyisobutlydiole eingesetzt werden. Bevorzugt werden dabei  $\alpha,\omega$ -Diole wie Ethandiol, Butandiol oder Hexandiol. Derartige Verbindungen sind ebenfalls kommerziell erhältlich.

Bei der Herstellung des Copolymeren (A) der allgemeinen Formel 1 können Aminoalkylpolydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4, bei der A eine Aminogruppe -NR'- bedeutet, oder Hydroxyalkylpolydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4, bei der A eine Aminogruppe -OH bedeutet oder ein Gemisch von Amino- und Hydroxyalkylpolydiorganosiloxan, mit oder ohne  $\alpha,\omega$ -OH-terminierte Alkylene der allgemeinen Formel 7 eingesetzt werden. Besonders bevorzugt wird nur Aminoalkylpolydiorganosiloxan eingesetzt, wobei durch Zusatz

von  $\alpha, \omega$ -OH-terminierten Alkylenen, speziell 1,4-Butandiol, die mechanischen Eigenschaften der Vulkanisate noch verbessert werden können.

Beispiele für Diisocyanate der allgemeinen Formel 5 sind aliphatische Verbindungen wie Isophorondiisocyanat, Hexamethylen-1,6-diisocyanat, Tetramethylen-1,4-diisocyanat und Methylendicyclohexy-4,4'-diisocyanat oder aromatische Verbindungen wie Methylendiphenyl-4,4'-diisocyanat, 2,4-Toluoldiisocyanat, 2,5-Toluoldiisocyanat, 2,6-Toluoldiisocyanat, m-Phenylendiisocyanat, p-Phenylendiisocyanat, m-Xyloldiisocyanat, Tetramethyl-m-xyloldiisocyanat oder Mischungen dieser Isocyanate.

Der Schmelzpunkt der Copolymeren (A) wird wesentlich durch das verwendete Diisocyanat bestimmt. Vorzugsweise beträgt der Schmelzpunkt des Copolymeren (A) 50 bis 200 °C, insbesondere 60 bis 150 °C, besonders bevorzugt 70 bis 120 °C.

Der Schmelzpunkt der Copolymeren (A) liegt bei reinen Polydiorganosiloxan-Urea-Copolymeren im Bereich von 50 – 80 °C bei Verwendung von aliphatischen Diisocyanaten zum Polymeraufbau und kann Werte bis 200 °C bei aromatischen Diisocyanaten erreichen. Der Einbau von Urethaneinheiten, beispielsweise über Hydroxyalkylpolydimethylsiloxane oder über  $\alpha, \omega$ -OH-terminierten Alkylene führt in der Regel zur Absenkung der Schmelzpunkts beziehungsweise zu einer Verbreiterung der Schmelzbereichs.

Die Silane der allgemeinen Formel 6 können reaktive Gruppen tragen, die mit Isocyanatgruppen reagieren. Bevorzugt sind hier entsprechende Aminosilane. Ferner können auch Isocyanatosilane eingesetzt werden, die entsprechend mit den OH- und NH-Funktionen der Präpolymere umgesetzt werden können. Als reaktive Gruppen, die unter Feuchtigkeit aushärten, werden speziell Alkoxygruppen eingesetzt.

In einer weiterhin bevorzugten Ausführungsform weisen die Copolymeren (A) Silanendgruppen der allgemeinen Formel 8



auf. Diese können durch Umsetzung der Polydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4 mit Diisocyanaten der allgemeinen Formel 5 mit Silanen der allgemeinen Formel 9



erhalten werden. In den allgemeinen Formeln 8 und 9 haben E, R<sup>1</sup>, R<sup>''</sup> und m die vorstehenden Bedeutungen. Vorzugsweise bedeutet E eine Isocyanatogruppe, R<sup>1</sup> Methyl, R<sup>''</sup> ein Methoxy- oder Ethoxyrest und m ist gleich 0 oder 1.

Die Silanendgruppen der allgemeinen Formel 8 besitzen eine sehr hohe Reaktivität, bis zum Faktor 100 bezogen auf die Endgruppen der allgemeinen Formel (2) und zeigen daher hervorragende und schnelle Aushärtungseigenschaften der Schmelzkleber unter Luftfeuchtigkeit.

Beispiele für geeignete Silane sind, Aminopropyltriethoxysilan, Aminopropyltrimethoxysilan, Aminopropylmethyldiethoxysilan, Aminopropylmethyldimethoxysilan, Aminopropyldimethylmethoxysilan, Aminopropyldimethylethoxysilan, Aminopropyltri(methylethylketoximo)silan, Aminopropylmethyldi(methylethylketoximo)silan, Bis-(Triethoxysilylpropyl)amin, Bis-(Trimethoxysilylpropyl)amin, Aminomethyltriethoxysilan, Aminomethyltrimethoxysilan, Aminomethylmethyldiethoxysilan, Aminomethylmethyldimethoxysilan, Phenylaminopropyltrimethoxysilan, Butylaminopropyltrimethoxysilan, Bis-(trimethoxysilylpropyl)amin, Isocyanatopropyltriethoxysilan, Isocyanatopropyltrimethoxysilan,

Isocyanatopropylmethyldiethoxysilan,  
Isocyanatopropylmethyldimethoxysilan,  
Isocyanatomethyltrimethoxysilan,  
Isocyanatomethyltriethoxysilan,  
Isocyanatomethylmethyldiethoxysilan,  
Isocyanatomethylmethyldimethoxysilan,  
Isocyanatomethyldimethylmethoxysilan,  
Isocyanatomethyldimethylethoxysilan.

Besonders bevorzugt ist die Herstellung der Copolymeren (A) unter Verwendung von Isocyanatoalkylsilane oder sekundäre Aminosilane, die zur Endterminierung besonders geeignet sind, da nach Umsetzung von OH/NH-terminierten Präpolymeren (erhalten aus der Reaktion der Polydiorganosiloxanen der allgemeinen Formel 4 bzw.  $\alpha, \omega$ -OH-terminierte Alkyle oder Polyalkylene der allgemeinen Formel 7 mit Diisocyanaten der allgemeinen Formel 5 keine weitere Vernetzungsreaktion mit den aus primären Aminosilanen entstandenen NH-Gruppen möglich ist. Derartige silantermierte Copolymeren sind in der Regel deutlich reproduzierbarer herzustellen.

Die Herstellung Copolymeren (A) und die anschließende Endterminierung kann sowohl in Lösung als auch im Extruder erfolgen. Wesentlich dabei ist, dass eine optimale und homogene Durchmischung der Bestandteile erfolgt. Phasenunverträglichkeit zwischen Siloxan und Polyethern können gegebenenfalls durch Lösungsvermittler verhindert werden.

Vorzugsweise werden zur Herstellung der Copolymeren (A) die Komponenten im entsprechenden Molverhältnis in einem Reaktionsextruder umgesetzt.

Bei der Herstellung des Copolymeren (A) wird vorzugsweise ein NCO/OH(NH)-Verhältnis über die Stöchiometrie von Diisocyanat der allgemeinen Formel 5 und OH/NH-terminiertem Polydimethylsiloxan der allgemeinen Formel 4 und gegebenenfalls von Alkylen der allgemeinen Formel 7 gewählt, das 0,75 bis 1,25, bevorzugt 0,9 bis 1,1, besonders bevorzugt 0,95 bis 1,05

beträgt. Die erforderliche Konzentration an Silan der allgemeinen Formel 6 wird so gewählt, dass im fertigen Copolymer kein Isocyanat mehr nachweisbar ist (bestimmbar über Standardmethoden wie IR-Spektroskopie).

Die Herstellung sollte für eine bessere Reproduzierbarkeit bevorzugt unter Ausschluss von Feuchtigkeit und unter Schutzgas, üblicherweise Stickstoff oder Argon erfolgen, um eine vorzeitige Aushärtung durch Hydrolyse der Silangruppen zu vermeiden. Ferner sollten die eingesetzten Polymerbausteine bevorzugt vorher ausgeheizt werden, um niedermolekuläre Verunreinigungen und Wasserspuren zu entfernen.

Zur Herstellung der Copolymeren (A) wird vorzugsweise ein Katalysator eingesetzt. Geeignete Katalysatoren für die Herstellung sind Dialkylzinnverbindungen, wie beispielsweise Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinndiacetat, oder tertiäre Amine wie beispielsweise N,N-Dimethylcyclohexanamin, 2-Dimethylaminoethanol, 4-Dimethylaminopyridin. Dieser Katalysator ist gleichzeitig der Katalysator für die Silankondensation zur Vernetzung nach der Applikation. Im Falle der reinen Harnstoff-Copolymeren kann die Polymerherstellung auch ohne Katalysator erfolgen, da sich die Amingruppen spontan und sehr rasch mit den Isocyanatgruppen umsetzen. Zur Beschleunigung der Aushärtung muss aber auch hier ein Katalysator in die Masse eingebracht werden. Interessant kann dies aber auch zur Herstellung katalysatorfreier Massen, die sich durch eine überaus gute Lagerstabilität auszeichnen. Im Falle sehr reaktiver Silane oder zur Herstellung schnell vernetzender Massen ist eine Einarbeitung eines reaktiven Katalysators direkt vor der Applikation ebenso denkbar.

Die Reaktionsverfolgung des Copolymeren (A) kann über verschiedene Analysemethoden durchgeführt werden. Die Umsetzung gilt als abgeschlossen, wenn die NCO-Bande im Infrarotspektrum nicht mehr nachweisbar ist.

Die Herstellung der Copolymeren (A) erfolgt vorzugsweise in einem geeigneten Lösungsmittel. Dabei werden in einer bevorzugten Ausführungsform Polydiorganosiloxane der allgemeinen Formel 4 und gegebenenfalls Alkylene der allgemeinen Formel 7 mit Diisocyanaten der allgemeinen Formel 5 und Alkoxy silanen der allgemeinen Formel 6 umgesetzt und gegebenenfalls danach mit weiteren Bestandteilen versetzt, bevor das Lösungsmittels entfernt wird.

Bei den ebenfalls in der Zusammensetzung enthaltenen Silanen (B) bedeutet  $\Omega$  bevorzugt eine Gruppe, die ausgewählt wird aus einem Rest  $-\text{NHR}^3$ ,  $-\text{NR}^3-\text{(CH}_2\text{)}_g-\text{NHR}^3$  und Glycidoxyster.

$\text{R}^3$  ist bevorzugt ein  $\text{C}_{1-8}$ -cyclischer, linearer oder verzweigter Alkylrest oder ein  $\text{C}_{6-18}$ -Arylrest, insbesondere ein  $\text{C}_{1-6}$ -Alkylrest.

$g$  bedeutet vorzugsweise den Wert 2, 3, 4 oder 5.

Bevorzugte aminofunktionelle Silane (B) sind Aminopropyltrimethoxysilan, Aminopropyltriethoxysilan, Aminopropylmethyldimethoxysilan, Aminopropylmethyldiethoxysilan, Aminoethylaminopropyltrimethoxysilan, Aminoethylaminopropyltriethoxysilan, Bis-(trimethoxysilylpropyl)amin oder epoxyfunktionelle Silane wie Glycidoxypyropyltrimethoxysilan, Glycidoxypyropyltriethoxysilan

In einer weiterhin bevorzugten Ausführungsform erfolgt die Herstellung der Copolymeren (A) in einem Extruder ohne Zusatz von weiteren Lösungsmitteln. Bei der Herstellung der Zusammensetzung werden dann in einem zweiten Schritt Silan (B) und gegebenenfalls weitere Zusätze in das Copolymer (A) im Extruder eingearbeitet. Die extrudierte Zusammensetzung wird vorzugsweise unter Luftauschluss durch Abkühlen verfestigt und zerkleinert, beispielsweise granuliert.

Zur Verbesserung der Haftungseigenschaften und der Oberflächenbenetzung kann die Zusammensetzung, speziell für den Einsatz als Schmelzklebstoff noch weitere klebrigmachende Harze enthalten, speziell Siliconharze die freie OH-Gruppen oder reaktive Alkoxygruppen enthalten. Vorzugsweise enthält die Zusammensetzung 5 - 20 Gewichtsteile eines klebrigmachenden Siliconharzes.

Gegebenenfalls können auch noch weitere Silane wie Methyltrimethoxysilan oder Vinyltrimethoxysilane oder andere übliche Wasserfänger enthalten sein.

Daneben können weitere übliche Additive enthalten sein. Füllstoffe wie Calciumcarbonat, Magnesiumcarbonat, Zinkcarbonat oder auch Metalloxide wie Titandioxid oder Aluminiumoxid. Ferner verstärkende Füllstoffe wie pyrogene oder gefällte Kieselsäuren und weiterhin UV-Absorber. Weiterhin können in den Zusammensetzungen zur Einstellung der Verarbeitungseigenschaften übliche Weichmacher, Antioxidantien und Pigmente enthalten sein. Vorzugsweise enthält die Zusammensetzung 5 - 20 Gewichtsteile eines Weichmachers.

Alle vorstehenden Symbole der vorstehenden Formeln weisen ihre Bedeutungen jeweils unabhängig voneinander auf. In allen Formeln ist das Siliciumatom vierwertig.

In den folgenden Beispielen sind, falls jeweils nicht anders angegeben, alle Mengen- und Prozentangaben auf das Gewicht bezogen und alle Drücke 0,10 MPa (abs.). Die Bestimmung der Viskositäten wurde an einem luftgelagerten Kegel-Platte Rheometer (CVO 75, Fa. Bohlin) durchgeführt. Der verwendete Messkegel hat einen Durchmesser von 1 bzw. 2 cm mit einem Kegelwinkel von 1°. Es wurden mit einer Oszillationsfrequenz von 0 - 10 Hz gemessen. Die Viskosität bei vorgebener Temperatur wurde aus der Steigung im Schubspannung-Scherraten-Diagramm bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit der Viskosität wurde bei einer konstanten Schubspannung von 5000 Pa bestimmt.

Die Bestimmung der Molekularmassen wurde mittels GPC (HP1090) in Toluol (0,5 ml/min) bei 23 °C bestimmt; Säule: PLgel Mixed C + PLgel 100 Å; Detektor: RI ERC7515.

### Beispiele

#### Herstellung von Isocyanatomethyl-trimethoxysilan:

Ausgehend von Chlormethyltrimethoxysilan wird Methylcarbamatomethyl-trimethoxysilan gemäß bekannter Verfahren (US 3,494,951) synthetisiert.

Dieses wird in ein Quarz-Pyrolyserohr, das mit Quarzwolle gefüllt ist, im Argon-Gasstrom eingepumpt. Die Temperatur im Pyrolyserohr beträgt zwischen 420 und 470 °C. Das Rohprodukt wird am Ende der beheizten Strecke mit Hilfe eines Kühlers auskondensiert und gesammelt. Die farblose Flüssigkeit wird durch Destillation unter reduziertem Druck gereinigt. Über Kopf geht bei ca. 88-90 °C (82 mbar) das gewünschte Produkt in über 99 %-iger Reinheit über, während im Sumpf das nicht umgesetzte Carbamat reisoliert werden kann. Dieses wird der Pyrolyse direkt wieder zugeführt.

Ausgehend von 56,9 g (273 mmol) Methylcarbamatomethyl-trimethoxysilan werden so 33,9 g (191 mmol) des gewünschten Produkts Isocyanatomethyl-trimethoxysilan in einer Reinheit > 97 % enthalten. Dies entspricht einer Ausbeute von 70 % d. Th.

#### Beispiel 1a:

250 g (66 mmol)  $\alpha, \omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 3800 werden bei 80 °C 0,5 h im Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 250 ml trockenem THF versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 11,2 g (52 mmol) Isophorondiisocyanat und 6,0 g (3,1 mmol) Isocyanatopropyltrimethoxysilan (erhältlich von CK-Witco unter Silquest® Y-5187) zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FI-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist.

Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses Polymer mit einem Erweichungsbereich von 85 - 95 °C und einer Viskosität von 70 Pas bei 90°C.

#### Untersuchung des Aushärtverhaltens:

Im wesentlichen werden zwei Tests zur Charakterisierung der Aushärtung durchgeführt. Die Polymerlösung in THF wird mit 200 ppm Dibutylzinndilaurat versetzt und im Vakuum eingedampft.

a) Qualitativer Test zur Bestimmung des Schmelzbereichs  
Von der eingedampften Polymerlösung werden 50 - 100 mg Substanz auf einer Glasplatte (76 x 26 mm) aufgetragen und mit einer zweiten Glasplatte (im Winkel von 90°) abgedeckt. Der Sandwich wird auf einer Heizplatte mit 2 °C pro Minute aufgeheizt. Das Aufschmelzen wird durch Scherung der beiden Platten gegeneinander bei verschiedenen Temperaturen verfolgt. Der Schmelzvorgang ist abgeschlossen, wenn sich die beiden Platten leicht gegeneinander verschieben lassen. Man erhält einen kontinuierlichen Anstieg der Erweichungstemperatur von etwa 105 °C nach 2 h, auf 150 °C nach 5 h und 240 °C nach 24 h. Nach 48 h ist ein Aufschmelzen nur noch unter teilweiser Zersetzung bei Temperaturen über 250 °C möglich. Die Aushärtung kann durch Verwendung unterschiedlicher Alköxysilane und Katalysatormengen deutlich beschleunigt oder verlangsamt werden. Für das Silan Isocyanatopropyl-trimethoxysilan ist die Aushärtung bei allen Beispielen vergleichbar schnell, lediglich die Viskositäten und Schmelztemperaturen unterscheiden sich in Abhängigkeit von der Polymerzusammensetzung. Auf die genauere Auswertung der anderen Beispiele wurde daher verzichtet. Im Falle des Silans Isocyanatomethyl-trimethoxysilan ist die Probe bereits nach 2 h nicht mehr aufschmelzbar.

b) Bestimmung der Schmelzviskosität

Eingedampfte und mit Katalysator versetzte Proben (wie oben beschrieben) können mittels Viskositätsmessung ebenso in der Aushärtung untersucht werden. Dabei wird die Viskosität temperaturabhängig in Abhängigkeit von der Härtungszeit an Luft untersucht. Im vorliegenden Beispiel steigt die Viskosität nach 2 h auf 15 kPas bei 110 °C an.

**Herstellung von Prüfkörpern für die Zugprüfung:**

Die Polymerlösung in THF wird mit 200 ppm Dibutylzinndilaurat versetzt und in Teflonschalen (10 x 10 cm, 5 mm Schichtdicke) ausgegossen und im Vakuum langsam bei 25 - 60 °C eingedampft. Die so erhaltenen Prüfplatten werden bei Raumtemperatur 14 Tage an Luft gelagert und anschließend Prüfkörper ausgestanzt. Die Ergebnisse der Zugprüfung (Reißfestigkeit, Reißdehnung und Modul) sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

**Herstellung von Prüfkörpern für Haftungstest:**

Das oben beschriebene eingedampfte und mit 200 ppm versetzte Produkt wird auf gereinigte Prüfkörper (Glas, Aluminium und PVC, 90 x 30 mm) aus der Schmelze aufgetragen und nach Abkühlung bei Raumtemperatur 14 Tage gelagert. Die Haftung wird qualitativ durch Ablösungsversuche mittels eines Metallspatels untersucht. Die Bewertung erfolgt qualitativ mit folgender Einstufung: Haftung (+), Teilhaftung (0), keine Haftung (-). Die Ergebnisse sind ebenso in Tabelle 1 zusammengestellt.

**Beispiel 1b:**

250 g (66 mmol)  $\alpha, \omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 3800 werden bei 80 °C 0,5 h im Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 250 ml trockenem THF versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 11,2 g (52 mmol) Isophorondiisocyanat und 5,5 g (31 mmol) Isocyanatomethyl-trimethoxysilan zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FT-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist. Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses Polymer mit einem Erweichungsbereich von 90 - 100 °C und einer Viskosität von 80 Pas bei 90 °C.

**Beispiel 2:**

400 g (110 mmol)  $\alpha, \omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 3800 werden bei 80 °C 0,5 h im

Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 550 ml trockenem THF versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 24,0 g (96 mmol) Diphenylmethyl-4,4'-diisocyanat und 6,4 g (31 mmol) Isocyanatopropyltrimethoxysilan in 50 ml trockenem THF zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FI-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist. Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses bis leicht gelbliches Polymer mit einem Erweichungsbereich von 145 - 155 °C und einer Viskosität von 45 Pas bei 150 °C.

Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt.

#### Beispiel 3:

500 g (300 mmol)  $\alpha,\omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 1600 werden bei 80 °C 0,5 h im Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 400 ml trockenem THF versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 55,6 g (260 mmol) Isophorondiisocyanat und 18,0 g (88 mmol) Isocyanatopropyltrimethoxysilan zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FI-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist. Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses Polymer mit einem Erweichungsbereich von 80 - 90 °C und einer Viskosität von 85 Pas bei 90 °C. Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt.

Haftung: Glas (+), Aluminium (0), PVC (-)

Reißfestigkeit: 3,10 MPas, Reißdehnung: 178 %,

100 % Modul: 1,46 MPas, Härte: 48 ShoreA.

#### Beispiel 4:

600 g (85 mmol)  $\alpha,\omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 6860 werden bei 80 °C 0,5 h im

Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 600 ml trockenem THF versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 15,0 g (70 mmol) Isophorondiisocyanat und 6,8 g (33 mmol) Isocyanatopropyltrimethoxysilan zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FI-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist. Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses Polymer mit einem Erweichungsbereich von 75 - 85 °C und einer Viskosität von 55 Pas bei 80 °C. Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt.

Haftung: Glas (+), Aluminium (0), PVC (-)

Reißfestigkeit: 1,68 MPas, Reißdehnung: 263 %,

100 % Modul: 0,86 MPas, Härte: 21 ShoreA..

#### Beispiel 5:

400 g (110 mmol)  $\alpha,\omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan mit einem mittleren Molekulargewicht von 3800 werden bei 80 °C 0,5 h im Vakuum ausgeheizt, auf 60 °C abgekühlt und anschließend mit 600 ml trockenem THF und 2,0 g (22 mmol) 1,4-Butandiol und 200 ppm Dibutylzinnlaurat versetzt. Zu der Lösung wird rasch ein Gemisch aus 24,5 g (115 mmol) Isophorondiisocyanat und 7,8 g (38 mmol) Isocyanatopropyltrimethoxysilan zudosiert. Die Umsetzung lässt sich an der Zunahme der Viskosität der Lösung und mittels FT-IR verfolgen. Die Lösung wird weiter 1 h bei 60 °C gerührt. Die Umsetzung ist abgeschlossen, wenn im FI-IR keine NCO-Bande mehr sichtbar ist. Anschließend wird das THF im Vakuum abgezogen. Man erhält ein farbloses bei Raumtemperatur festes Polymer mit einem Erweichungsbereich von 90 - 100 °C und einer Viskosität von 65 Pas bei 95 °C.

Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt.

Haftung: Glas (+), Aluminium (+), PVC (-)

Reißfestigkeit: 3,43 MPas, Reißdehnung: 473 %,

100 % Modul: 1,21 MPas, Härte: 45 ShoreA..

#### Beispiel 6:

In einem Zweiwellenkneter der Firma Collin, Ebersberg, mit 4 Heizzonen wurde unter Stickstoffatmosphäre in der ersten Heizzone das Aminoproylterminierte Siliconöl dosiert. Das Temperaturprofil der Heizzonen war wie folgt programmiert: Zone 1 30 °C, Zone 2 90 °C, Zone 3 150 °C und Zone 4 140 °C.

Drehzahl: 90 min<sup>-1</sup>

Eduktdosierung:

7,6 g/min (2 mmol/min)  $\alpha, \omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan  
(Mn = 3800)

356 mg/min (1,6 mmol/min) Isophorondiisocyanat

100 mg/min (0,5 mmol/min) Isocyanatopropyltrimethoxysilan

Ein Gemisch aus Isophorondiisocyanat und Isocyanatopropyltrimethoxysilan - vorher mit Stickstoff gesättigt - wird bei 40 °C am Anfang der Extruderschnecken über eine Dosierpumpe aufgegeben. Das Isocyanatgemisch wird dann in der zweiten Heizzone auf 90 °C erwärmt und der Reaktionsextruder mit den oben eingestellten Temperaturen wenige Minuten mit den beiden Isocyanaten gespült. Bei 90 °C wird das  $\alpha, \omega$ -Bisaminpropylpolydimethylsiloxan - welches zuvor 0,5 h im Vakuum bei 80 °C ausgeheizt und mit Stickstoff gesättigt wurde - über eine Dosierpumpe zudosiert und das Gemisch im Extruder auf 150 °C geheizt und damit vollständig umgesetzt. Das Produkt wird über eine Auslassdüse bei 140 °C extrudiert und anschließend im Stickstoffstrom gekühlt. Nach ca. 30 Min. hat sich die Reaktion und die Produktqualität gleichmäßig eingestellt. Das erhaltene Vorprodukt wird verworfen. Man erhält dann ein farbloses Polymer mit einem Erweichungsbereich von 80 - 90 °C und einer Viskosität von 75 Pas bei 90 °C. Zur einfacheren Handhabung wird das Produkt granuliert.

Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt.

Haftung: Glas (+), Aluminium (0), PVC (-)

Reißfestigkeit: 2,75 MPas, Reißdehnung: 243 %,

100 % Modul: 1,62 MPas, Härte: 42 ShoreA

Beispiel 7:

zu den nach Beispiel 1 (Beispiel 7a), 3 (Beispiel 7b) und 4 (Beispiel 7c) hergestellten Polymeren werden nach der Umsetzung 4,0 Gew.% Aminoethylaminopropyltrimethoxysilan zugesetzt und anschließend das THF im Vakuum bei 25 °C langsam abgedampft.

7a) hat einen Erweichungsbereich von 80 - 90 °C und eine Viskosität von 60 Pas bei 90 °C.

7b) hat einen Erweichungsbereich von 85 - 95 °C und eine Viskosität von 90 Pas bei 90 °C.

7c) hat einen Erweichungsbereich von 75 - 85 °C und eine Viskosität von 35 Pas bei 90 °C.

Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt und die Ergebnisse in Tabelle 1 zusammengefasst.

#### Beispiel 8:

Zu dem nach Beispiel 4 hergestellten Polymer werden nach der Umsetzung 20 Gew.% Siliconharz (MQ) zugesetzt und anschließend das THF im Vakuum bei 60 - 90 °C abgezogen.

Das farblose Produkt hat einen Erweichungsbereich von 80 - 90 °C und eine Viskosität von 35 Pas bei 90 °C.

Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt und die Ergebnisse in Tabelle 1 zusammengefasst.

#### Beispiel 9:

Zu dem nach Beispiel 3 hergestellten Polymer werden nach der Umsetzung 20 Gew.% eines trimethylsilylterminierten Siliconöls mit einer Viskosität von 100 mPas zugesetzt und anschließend das THF im Vakuum bei 60 - 90 °C abgezogen.

Das farblose, leicht trübe Produkt hat einen Erweichungsbereich von 75 - 85 °C und eine Viskosität von 20 Pas bei 90 °C.

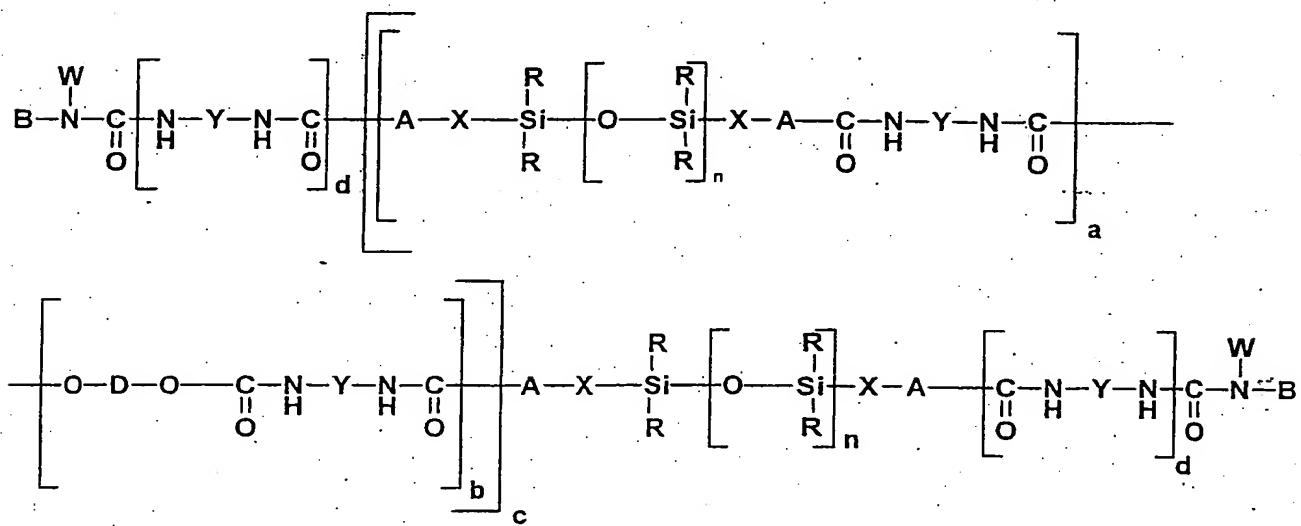
Die Haftungs- und Zugdehnungsversuche werden wie in Beispiel 1 beschrieben durchgeführt und die Ergebnisse in Tabelle 1 zusammengefasst.

Tabelle 1: Eigenschaften von feuchtigkeitshärtenden Zusammensetzungen nach Beispiel 1 - 9

Beispiel	1a	1a	2	7a	7b	7c	8	9
Katalysator DBTL / ppm	200	200	200	200	200	200	200	200
Schmelzpunkt °C	85 - 95	90 - 100	145-155	80 - 90	85 - 95	75 - 85	80 - 90	75 - 85
Viskosität Pas (°C)	70 (90)	80 (90)	45 (150)	60 (90)	90 (90)	35 (90)	35 (90)	20 (90)
Reißfestigkeit MPas, DIN 53504	2,62	2,87	4,25	2,95	3,64	2,07	2,24	3,47
Reißdehnung %, DIN 53504	216	208	383	164	134	164	170	181
Modul MPas /%, DIN 53504	1,46	1,65	1,71	2,12	2,96	1,51	1,35	2,18
Härte [ShoreA], DIN 53505	38	42	48	26	40	25	38	53
Haftung/Glas	+	+	+	+	+	+	+	+
Haftung/Alu	0	+	0	+	+	+	0	0
Haftung/PVC	-	0	-	+	+	+	0	-

## Patentansprüche

1. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen, enthaltend  
 (A) 100 Gewichtsteile an silanterminiertem Polydiorganosiloxan-Urea/Urethan-Copolymer der allgemeinen Formel 1



(1),

worin

- R einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,
- X einen Alkylen-Rest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte Methyleneinheiten durch Gruppen -O- ersetzt sein können,
- A ein Sauerstoffatom oder eine Aminogruppe -NR'-,
- R' Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen,
- Y einen gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,
- D einen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl- oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylester substituierten Alkylenrest mit 1 bis 700 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte Methyleneinheiten durch Gruppen -O-, -COO-, -OCO-, oder -OCOO-, ersetzt sein können;

B einen Rest der allgemeinen Formel 2



- Z einen Alkylen-Rest mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen,
- R<sup>1</sup> einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituierter Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
- R<sup>2</sup> einen mit Feuchtigkeit reaktiven Rest, der ausgewählt wird aus C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-, C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Acyl-, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylaminoxy- und C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyloximostenen,
- W einen Rest B oder Wasserstoff,
- m den Wert 0, 1 oder 2,
- n eine ganze Zahl von 1 bis 300,
- a eine ganze Zahl von mindestens 1,
- b 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 30,
- c eine ganze Zahl von 1 bis 30 und
- d den Wert 0 oder 1 bedeuten,  
mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung der Einheiten so gewählt ist, dass das Copolymer einen Schmelzpunkt im Bereich von 30 - 200 °C besitzt und
- (B) 0,1 bis 20 Gewichtsteile an Silan der allgemeinen Formel 3



wobei

- Ω eine Gruppe, die ausgewählt wird aus -NHR<sup>3</sup>,  
-NR<sup>3</sup>- (CH<sub>2</sub>)<sub>g</sub>-NHR<sup>3</sup>, Acryl-, Methacryl-, OCN-, -SH, Glycidoxy- oder Chlorrest,
- R<sup>3</sup> Wasserstoff oder einen gegebenenfalls halogensubstituierten C<sub>1-18</sub>-Kohlenwasserstoffrest,
- R<sup>2</sup> eine Methoxy- oder Ethoxygruppe,
- e die Werte 1 oder 3
- f die Werte 0 oder 1 und
- g Werte von 1 bis 10 bedeuten.

2. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1, bei denen die Copolymeren (A) Endgruppen der allgemeinen Formel 8



aufweisen, worin  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^{\prime\prime}$  und  $m$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen aufweisen.

3. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1 oder 2, bei denen die Polydiorganosiloxanabschnitte im Copolymer (A) ein Molekulargewicht Mw von 500 bis 30000 aufweisen.
4. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1 bis 3, bei denen R Methyl oder Phenyl bedeutet.
5. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1 bis 4, bei denen A eine Aminogruppe bedeutet.
6. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1 bis 5, bei denen  $\text{R}^{\prime\prime}$  einen Methoxy- oder Ethoxyrest bedeuten.
7. Feuchtigkeitsvernetzbare Zusammensetzungen nach Anspruch 1 bis 6, bei denen  $\Omega$  eine Gruppe bedeutet, die ausgewählt wird aus einem Rest  $-\text{NHR}^3$ ,  $-\text{NR}^3-(\text{CH}_2)_g-\text{NHR}^3$  und Glycidoxyster.
8. Verwendung der Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 bis 8 als einkomponentigen, über Silanendgruppen feuchtigkeitsvernetzenden Schmelzklebstoff.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 02/07126A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 7 C09J183/10 C09J175/02 C08G18/61 C08G77/458

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C09J C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 98 12075 A (MINNESOTA MINING & MFG) 26 March 1998 (1998-03-26) example 32	1-8
A	WO 96 34030 A (MINNESOTA MINING & MFG ; SHERMAN AUDREY A (US); ROMANKO WALTER R (U) 31 October 1996 (1996-10-31) cited in the application claims 1,2; examples 73-77	1-8
A	EP 0 250 248 A (MINNESOTA MINING & MFG) 23 December 1987 (1987-12-23) cited in the application page 6, line 29-33; claim 1	1-8



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority, claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

23 October 2002

Date of mailing of the international search report

04/11/2002

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Lanz, S

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

Hu/EP 02/07126

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
WO 9812075	A	26-03-1998	AU	4353997 A		14-04-1998
			WO	9812075 A1		26-03-1998
			WO	9914082 A1		25-03-1999
WO 9634030	A	31-10-1996	WO	9634030 A1		31-10-1996
			AU	5668396 A		18-11-1996
			BR	9608034 A		12-01-1999
			CA	2218363 A1		31-10-1996
			CN	1186505 A		01-07-1998
			EP	0822952 A1		11-02-1998
			JP	11504373 T		20-04-1999
EP 0250248	A	23-12-1987	AU	591989 B2		21-12-1989
			AU	7447487 A		24-12-1987
			BR	8703101 A		08-03-1988
			CA	1339226 A1		05-08-1997
			DE	3752135 D1		11-12-1997
			DE	3752135 T2		16-04-1998
			EP	0250248 A2		23-12-1987
			EP	0737700 A2		16-10-1996
			ES	2110391 T3		16-02-1998
			HK	1011036 A1		22-09-2000
			JP	2901236 B2		07-06-1999
			JP	10310628 A		24-11-1998
			JP	3075470 B2		14-08-2000
			JP	10279915 A		20-10-1998
			JP	2799381 B2		17-09-1998
			JP	8231726 A		10-09-1996
			JP	3024678 B2		21-03-2000
			JP	10060386 A		03-03-1998
			JP	2784761 B2		06-08-1998
			JP	63003029 A		08-01-1988
			KR	9609692 B1		23-07-1996
			KR	9609691 B1		23-07-1996
			TR	24305 A		01-08-1991
			US	5512650 A		30-04-1996
			US	5461134 A		24-10-1995
			US	5214119 A		25-05-1993
			US	5290615 A		01-03-1994
			ZA	8704414 A		22-02-1989

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

Fu, /EP 02/07126

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C09J183/10 C09J175/02 C08G18/61 C08G77/458

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C09J C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 98 12075 A (MINNESOTA MINING & MFG) 26. März 1998 (1998-03-26) Beispiel 32	1-8
A	WO 96 34030 A (MINNESOTA MINING & MFG ; SHERMAN AUDREY A (US); ROMANKO WALTER R (U) 31. Oktober 1996 (1996-10-31) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,2; Beispiele 73-77	1-8
A	EP 0 250 248 A (MINNESOTA MINING & MFG) 23. Dezember 1987 (1987-12-23) in der Anmeldung erwähnt Seite 6, Zeile 29-33; Anspruch 1	1-8

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- \* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- \*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- \*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- \*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- \*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- \*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- \*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- \*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- \*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- \*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
23. Oktober 2002	04/11/2002

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Lanz, S
---	--

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen  
Eu./EP 02/07126

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9812075	A	26-03-1998	AU	4353997 A	14-04-1998
			WO	9812075 A1	26-03-1998
			WO	9914082 A1	25-03-1999
WO 9634030	A	31-10-1996	WO	9634030 A1	31-10-1996
			AU	5668396 A	18-11-1996
			BR	9608034 A	12-01-1999
			CA	2218363 A1	31-10-1996
			CN	1186505 A	01-07-1998
			EP	0822952 A1	11-02-1998
			JP	11504373 T	20-04-1999
EP 0250248	A	23-12-1987	AU	591989 B2	21-12-1989
			AU	7447487 A	24-12-1987
			BR	8703101 A	08-03-1988
			CA	1339226 A1	05-08-1997
			DE	3752135 D1	11-12-1997
			DE	3752135 T2	16-04-1998
			EP	0250248 A2	23-12-1987
			EP	0737700 A2	16-10-1996
			ES	2110391 T3	16-02-1998
			HK	1011036 A1	22-09-2000
			JP	2901236 B2	07-06-1999
			JP	10310628 A	24-11-1998
			JP	3075470 B2	14-08-2000
			JP	10279915 A	20-10-1998
			JP	2799381 B2	17-09-1998
			JP	8231726 A	10-09-1996
			JP	3024678 B2	21-03-2000
			JP	10060386 A	03-03-1998
			JP	2784761 B2	06-08-1998
			JP	63003029 A	08-01-1988
			KR	9609692 B1	23-07-1996
			KR	9609691 B1	23-07-1996
			TR	24305 A	01-08-1991
			US	5512650 A	30-04-1996
			US	5461134 A	24-10-1995
			US	5214119 A	25-05-1993
			US	5290615 A	01-03-1994
			ZA	8704414 A	22-02-1989

This Page Blank (uspto)

STN Karlsruhe

L3 ANSWER 1 OF 1 WPIDS COPYRIGHT 2005 THE THOMSON CORP on STN  
 ACCESSION NUMBER: 2003-312878 [30] WPIDS

DOC. NO. CPI: C2003-082031

TITLE:

Moisture crosslinking composition containing a siloxane-urea/urethane copolymer and silane useful as a single component adhesive melt moisture crosslinking via silane end groups.

DERWENT CLASS: A25 A26 A81 G03

INVENTOR(S): CHATZINERANTZIS, M; PACHALY, B; SCHAEFER, O; SCHINDLER, W; SCHAFER, O

PATENT ASSIGNEE(S): (CONE) CONSORTIUM ELEKTROCHEM IND GMBH; (CHAT-I)

CHATZINERANTZIS M; (PACH-I) PACHALY B; (SCHA-I) SCHAFER O; (SCHI-I) SCHINDLER W

COUNTRY COUNT: 24

PATENT INFORMATION:

PATENT NO	KIND	DATE	WEEK	LA	PG	MAIN IPC
WO 2003018704	A1	20030306	(200330)*	GE	31	C09J183-10<---
RW: AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE TR						
W: CN JP PL US						
DE 10141235	A1	20030327	(200330)			C08G018-61
EP 1419208	A1	20040519	(200433)	GE		C09J183-10
R: AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE TR						
EP 1419208	B1	20041201	(200479)	GE		C09J183-10
R: BE DE FR GB NL						
US 2004260037	A1	20041223	(200504)			C08G077-458
DE 50201697	G	20050105	(200505)			C09J183-10
JP 2005501165	W	20050113	(200506)		50	C08L075-00

APPLICATION DETAILS:

PATENT NO	KIND	APPLICATION	DATE
WO 2003018704	A1	WO 2002-EP7126	20020627
DE 10141235	A1	DE 2001-10141235	20010823
EP 1419208	A1	EP 2002-760201	20020627
WO 2002-EP7126			20020627
EP 1419208	B1	EP 2002-760201	20020627
WO 2002-EP7126			20020627
US 2004260037	A1	WO 2002-EP7126	20020627
US 2004-485668			20040203
DE 50201697	G	DE 2002-00201697	20020627
EP 2002-760201			20020627
WO 2002-EP7126			20020627
JP 2005501165	W	WO 2002-EP7126	20020627
JP 2003-523556			20020627

FILING DETAILS:

PATENT NO	KIND	PATENT NO
EP 1419208	A1 Based on	WO 2003018704
EP 1419208	B1 Based on	WO 2003018704
DE 50201697	G Based on	EP 1419208
Based on		WO 2003018704
JP 2005501165	W Based on	WO 2003018704

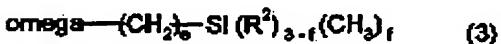
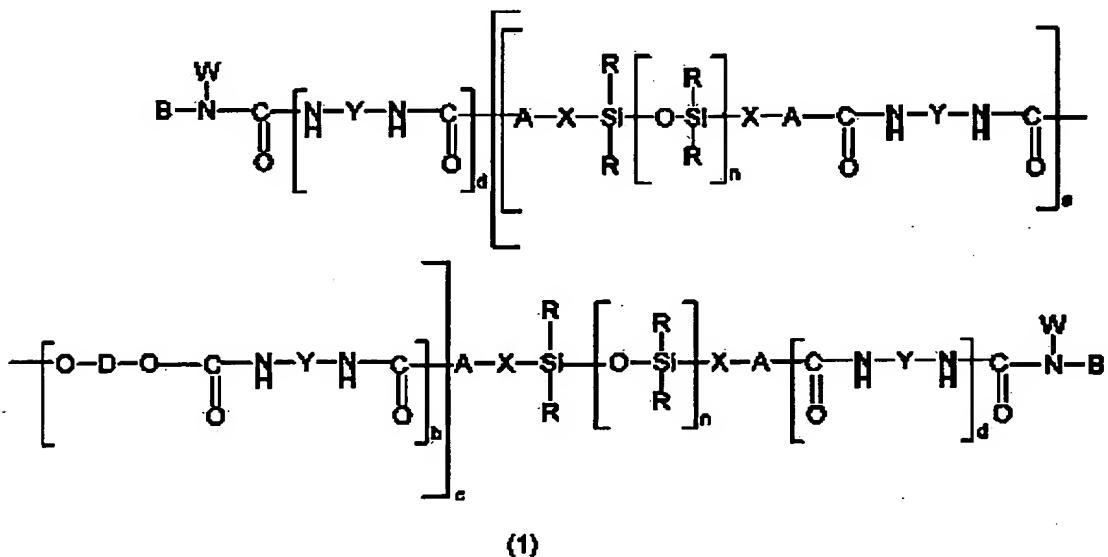
PRIORITY APPLN. INFO: DE 2001-10141235 20010823

## INT. PATENT CLASSIF.:

MAIN: C08G018-61; C08G077-458; C08L075-00; C09J183-10

SECONDARY: C08K005-541; C09D175-04; C09J175-02; C09J175-04

## GRAPHIC INFORMATION:



## BASIC ABSTRACT:

WO2003018704 A UPAB: 20030513

NOVELTY - A moisture crosslinking composition containing (A) 100 parts by wt. of silane-terminated polydiorganosiloxane-urea/urethane copolymer and (B) 20 parts by wt. of a silane is new.

DETAILED DESCRIPTION - A moisture crosslinking composition containing (A) 100 parts by wt. of silane-terminated polydiorganosiloxane-urea/urethane copolymer of formula (1):

R = a monovalent, optionally fluorine or chlorine substituted 1-20C hydrocarbon,

X = 1-20C alkylene, in which non-adjacent methylene units can be substituted by -O-,

A = O or amino group -NR-,

R' = H or 1-10C alkyl,

Y = 1-20C hydrocarbon optionally substituted by F or Cl,

D = 1-700C alkylene, optionally substituted by F, Cl, 1-6C alkyl or 1-6C alkyl ester, in which non-adjacent methylene units can be substituted by: -O-, COO-, -OCO-, or OC0O-, B = a residue of formula (2): ,

Z = 1-10C alkylene,

R<sup>1</sup> = monovalent, optionally F or Cl substituted 1-12C hydrocarbon,

R'' = a moisture reactive residue selected from: 1-4C alkoxy, 1-20C acyl, 1-6C alkylaminoxy, and 1-6C alkoxime,

W = B or H,

m = 0, 1, or 2,

n = 1-300,

STN Karlsruhe

a = at least 1,  
b = 0 or 1-30,  
c = 1-30,

d = 0 or 1, with the proviso that the units of the composition are selected so that the copolymer has a melting point of 30-200 deg. C, and (B) 0.1-20 parts by wt. of a silane of formula (3): where omega = a group selected from: NHR<sub>3</sub>, NR<sub>3</sub>, (CH<sub>2</sub>)<sub>g</sub>-NHR<sub>3</sub>, (meth)acryl, OCN, SH, glycidoxy, or Cl,

R<sub>3</sub> = H, or optionally halogen substituted 1-18C hydrocarbon,  
R<sub>2</sub> = methoxy or ethoxy,

e = 1 or 3,  
f = 0 or 1,  
g = 1-10.

USE - The composition is useful as a single component moisture crosslinking via silane end groups adhesive melt (claimed).

ADVANTAGE - The silane end groups (formula 8) have very high reactivity, 100-fold higher than the end groups of formula (2), and thus give the adhesive melt outstanding and quick curing properties in the presence of atmospheric moisture.

Dwg. 0/0

TECHNOLOGY FOCUS:

WO 2003018704 A1UPTX: 20030513

TECHNOLOGY FOCUS - POLYMERS - Preferred Components: The copolymer A has end groups of formula (8):

R<sub>1</sub>, R'', and m = as above. The polyorganosiloxane portion of copolymer A has a mol. wt. of 500-30000. R in the above formula = Me or phenyl, A = amino, R'' = methoxy or ethoxy, and approximately W = NHR<sub>3</sub>, NR<sub>3</sub>, (CH<sub>2</sub>)<sub>g</sub>-NHR<sub>3</sub>, or glycidoxy.

FILE SEGMENT: CPI

FIELD AVAILABILITY: AB; GI

MANUAL CODES: CPI: A05-G01E; A05-J04; A06-A00E1; A08-D06; A11-C02;  
A12-A05F; G03-B01; G03-B02E4

This Page Blank (uspto)